

湿式燃焼火攻法における油層内現象と増進採油機構に関する研究

著者	坂本 靖英
号	2768
発行年	2001
URL	http://hdl.handle.net/10097/8041

氏名	坂本 靖英
授与学位	博士（工学）
学位授与年月日	平成14年3月25日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科、専攻の名称	東北大学大学院工学研究科（博士課程）地球工学専攻
学位論文題目	湿式燃焼火攻法における油層内現象と増進採油機構に関する研究
指導教官	東北大学教授 榎本 兵治
論文審査委員	主査 東北大学教授 榎本 兵治 東北大学教授 千田 信 東北大学教授 齋藤 清次 東北大学助教授 新堀 雄一

論文内容要旨

石油は近代社会のエネルギーの根幹をなすものであり、少なくとも 21 世紀前半においてその必要性に変化はないものと期待が高い。そこで、今後の石油の需要量の確保と安定供給のために、従来技術では回収が不可能な、原始埋蔵量の 2/3 にも及ぶ取り残された油の回収のための増進回収法（Enhanced Oil Recovery；以降 EOR と称す）の確立が極めて重要となる。

EOR としてはこれまでに多くのものが提案され、その大半は技術的検討が終了しているが、経済性と適用油層条件などの制約により、その多くは実用化が困難になっている。そのなかで、熱攻法、特に地上で発生させた水蒸気を油層に圧入して回収率を増加させる水蒸気攻法は、有望な方法として EOR プロジェクトの主流となっている。このほか熱攻法には油層内で油の一部を燃焼させて発生する熱を利用して増進回収を図る火攻法もあり、熱効率の観点からは期待が高い方法であるが、燃焼反応の制御が困難であるという問題のために広範な普及には至っていない。

本研究では、熱的効果による新たな EOR を対象とした検討を行った。これは湿式燃焼火攻法（Superwet In-Situ Combustion）と称される方法であり、空気と水を油層に圧入し、油層内で油の一部を熱水中で酸化反応（湿式燃焼）させ、その発生熱により熱水帯あるいは水蒸気発生帯を形成させて油の増進回収を図ることを目的とした回収法である。したがって、湿式燃焼火攻法は、地下反応による発生熱を利用すること、および水蒸気もしくは熱水による油の置換を排油機構としている点において、火攻法と水蒸気攻法の接点に位置付けられる、新しい形態の熱攻法である。

湿式燃焼火攻法は、また、油層内で水蒸気（あるいは熱水）を製造する水蒸気攻法ともいえるもので、水蒸気攻法や火攻法と比較して次のような利点があると考えられている。

- 1) 水蒸気攻法では、水蒸気輸送距離の増加による効率低下が生じるため、その適用に油層深度の制限を受け、一般には、油層としては浅部の 1000m 深が限度とされている。一方湿式燃焼火攻法では、油層内で水蒸気や熱水を発生させるため、その適用に油層深度の制限を受けない。
- 2) 火攻法では、残留コークを全て燃焼させなければならない、そのために必要とされる空気の圧縮動力費の高さが、実用化を妨げる主要因の 1 つとなっている。一方湿式燃焼火攻法では、燃焼帯の移動速度は水の供給量によって決まると考えられるので、不要な燃料となる油を残しながら燃焼帯を進行させることができ、したがって消費空気量を少なくすることができる。また、火攻法における気相燃焼に比べ湿式燃焼反応は低い温度でも進行するため制御が容易であり、制御の難しさ等の実用化を妨げ

ている問題の解決が期待される。

しかし、湿式燃焼火攻法に関する従来の研究はほとんどなく、火攻法において水を同時に圧入した場合で、圧入水量を極度に増加させた際に生じた現象として整理した報告があるに過ぎない。また、湿式酸化反応については有機廃棄物処理に関して研究が行われているが、資源開発への応用という観点からの研究は見あたらない。すなわち、湿式燃焼火攻法の燃焼機構や排油機構については未解明な点が多く、正確な全体像が掴めていない。

このような背景のもとに、本研究は湿式燃焼火攻法を対象として、その油層内現象ならびに増進回収効果をその機構を明らかにし、湿式燃焼火攻法の全体像を明らかにすること、および石油の増進回収法としての技術的評価を目的として行ったものである。

本論文は以下の5章から構成されており、その概要は次の通りである。

第1章は緒論であり、上記のような、本研究の背景および研究目的について述べている。

第2章では、湿式燃焼火攻法を熱攻法の一つと位置付け、油層岩と油と水の相互作用の結果をして表現される流動特性の温度依存性、ならびに熱水の掃攻による増進回収効果に関する基礎的知見を得ることを目的として、特に従来の研究で熱攻法の対象とされなかった比較的軽質な油層を想定し、油-熱水二相系による検討を行った。

等温系の油回収実験より、不動水飽和率は、150℃までは約28%とほぼ一定であるが、200℃では41%、250℃では49%と、温度の上昇に伴い上昇することがわかった。他方残留油飽和率は、100℃までは約29%とほぼ一定であるが、150℃以上の温度域では著しく低下し、200℃では16%、250℃では4%であった。温度上昇による残留油飽和率の低下は、熱水の掃攻により増進回収が得られることを示唆している。また、油および水の相対浸透率を測定し、それらの温度依存性に関する検討を行った結果、温度が高くなると、油の相対浸透率は増加し、水の相対浸透率は減少することがわかった。さらに、水と油の相対的流動性を表す易動度比は温度が高くなると減少し、250℃では、20℃の場合の100分の1程度まで減少する。この温度範囲における油の水の粘度比はほぼ一定とみなせることから、比較的軽質な油の熱水掃攻による増進回収効果は、油の粘度低下の影響というよりも、むしろ相対浸透性そのものの改善に起因したものであることが示唆された。

次に、不動水飽和率、残留油飽和率および相対浸透率を温度のパラメータとして導入した等温油-熱水二相流動系モデルを構築した。モデル計算の結果、油層温度が上昇すると、圧入水のブレイクスルーの時間が著しく遅れること、および圧入水フロント近傍での油飽和率の勾配が急になることから、圧入水による効率的な油の置換がなされていることがわかった。この油層内挙動を反映して、回収率も温度とともに高くなっており、熱水の掃攻による増進回収効果および機構が明らかになった。

さらにパラメータの影響を検討した結果、1) 水攻法の実施により残留油飽和率状態にある低飽和率油層においても、温度上昇による相対浸透性改善の効果に起因して増進回収効果が得られること、2) 比較的軽質な油層については油層の相対浸透性の改善により増進回収が得られるのに対し、重質油層における増進回収効果は温度上昇による油の粘性低下で易動度比が減少することに起因していることを明らかにした。

第3章では、湿式燃焼火攻法の油層内現象の解明、ならびにEOR法としての効果に関する検討を行った。

まず、燃焼管を用いた湿式燃焼火攻法実験を行った。油層内温度分布の変化から、油の湿式燃焼反応に伴う発熱により油層内に高温域が形成され、安定的に下流へと移動していく挙動が観察された。これにより、技術的に湿式燃焼火攻法が成立することを確認するとともに、その成立条件について検討した。また、高温域のピーク温度は油層圧力ならびに供給酸素量によって決まり、供給酸素量が十分な場合の

ピーク温度は油層圧力に対応した水の飽和蒸気圧温度であることがわかった。さらに、湿式燃焼火攻法の形態として、水蒸気による掃攻と熱水による掃攻の2種類あることが示された。前者は供給酸素量が多い場合、また水の圧入レートが低い場合に、水蒸気の生成が促進されることにより成立する。後者は、供給酸素量が少ない場合、あるいは水の圧入レートが高い場合に、水の相変化が抑制されることに起因して成立する。水蒸気による掃攻と熱水による掃攻のそれぞれについて、湿式燃焼火攻法の EOR 法としての可能性について検討した結果、水攻法実施後の油層であっても、水攻法実施前の初期油量に対して15~30%程度の高い油回収率が得られることが示された。とりわけ、水蒸気による掃攻の場合には、熱水による油の置換のみならず、軽質分の気化・凝縮による油の集積効果が認められ、増進回収の要因となっていることがわかった。

次に、要素研究として湿式燃焼反応実験を行った。バッチ系反応装置を用いた実験では以下の知見を得た。1) 理論当量の50%以下の供給酸素量の場合、湿式燃焼反応では供給酸素量の約40%が炭酸ガスになる。2) 反応後の水相にはカルボン酸、ケトン、アルデヒド等の生成が確認された。これらの生成物により多少の界面張力の低下が認められたが、産油挙動ならびに増進回収に及ぼす影響は小さい。3) 分子量分布の比較から、反応後の油はいくぶん重質となる傾向にあることがわかったが、質的に反応前と大差ない。

さらに、流通系装置を用いた実験の結果から、酸素の消費量を指標として湿式燃焼速度式を導出し、見掛けの活性化エネルギーとして85.6kJ/molを得た。また、この結果に基づき、湿式燃焼火攻法のモデル化に必要な単位酸素消費量あたりの油の消費量ならびに発熱量の計算式として、油の消費速度式と発熱速度式を導出している。

第4章では、第3章で解明した現象を基に、油-水二相流動系の湿式燃焼火攻法モデルを構築し、計算機実験を行っている。そして、酸素圧入レート、酸素濃度、水の圧入レート、初期油層温度、予熱のための圧入熱水の温度および原油の比重等の影響について考察することにより、湿式燃焼火攻法における挙動全般の把握を行っている。

モデル化は第3章で明らかにした湿式燃焼火攻法の掃攻形態のうち熱水による掃攻を対象とし、また、圧入気体および反応生成気体による置換効果で産油挙動が複雑になることおよび油-水-気体三相系流動挙動のモデル化による不正確さを排除するため、油-水の二相系とした。すなわち、モデルは2相（油、水）、3成分（油、水、酸素）であり、酸素それ自体の流動を表現するために、仮想的な水の流動を規定した。本研究で構築したモデルの概要は次のようである。

- 1) 油層は一次元で周囲の熱損失は無視できる。熱の移動は伝導と対流による。また、油層圧力は一定とする。
- 2) 酸素は体積をもたず、水相中に溶解しているが、その流動は水の流動とは独立である。また、酸化反応では油と酸素が反応してこれらが消費されて熱を発生するが、生成物は無視する。
- 3) 油と水の比重・粘度・相対浸透率、不動水飽和率、残留油飽和率は温度のパラメータとして変化し、比重は圧力によっても変化する。

次に構築したモデルを用いた計算機実験を行い、湿式燃焼火攻法における油層内部の現象の解析を行った。操作条件として、1) 油層は水攻法によって通常の限界まで採油が行われ、本来の油層温度における残留油飽和率の状態にある、2) そこに、熱水と酸素を一定流量とともに10時間圧入し、油層を予熱する、3) その後熱水を油層温度の水に切り替え、水と酸素を供給し続けることによって湿式燃焼火攻法に移行する、という条件を設定した。

その結果、反応域に関しては、圧入酸素は極めて短い区域において消費されており、従来の火攻法と同様に極めて局所的に燃焼域が形成されていることがわかった。ただし、熱容量の大的な水中での反応であるので、火攻法の場合のような発生した熱による極度に局所的な温度上昇は起こらず、比較的広い範囲にわたって高温域が形成される。また、油の集積に関しては、燃焼域から下流の区域は対流および伝

導により高温に維持され、油層に温度勾配が生じるために、温度上昇で流動可能となった油が集積してオイルバンクが形成される。そして、形成したオイルバンクが流出端に到達することにより、増進回収が得られるという機構を解明した。人為的に制御できる圧入条件の影響に関しては、燃焼域の移動速度が酸素の圧入条件に依存しているのに対し、形成されたオイルバンクの移動速度は水の圧入レートに依存していることがわかった。

さらに各パラメータの影響を検討した結果、油層内で湿式燃焼反応を安定的に持続させるためには、油層内における酸素の流速が供給冷水の流速より高いことが条件となるなど、微妙な熱バランスを満足させる必要があるという燃焼域の形成条件と、温度上昇に起因する増進回収機構について重要な知見が得られた。

第5章は、本論文の結論であり、本研究を通じて得られて成果を総括し、要約している。

論文審査結果の要旨

本研究は、高温熱水中における有機物の酸素酸化反応（湿式燃焼反応）により発生する熱を石油の増進回収（EOR）へ利用する湿式燃焼火攻法について、その油層内現象ならびに増進回収効果とその機構を明らかにすることによって、湿式燃焼火攻法の全体像を把握するとともに、EOR法としての可能性を技術的観点から評価したものである。

第1章は緒論であり、本研究の背景および研究目的について述べている。

第2章では、湿式燃焼火攻法などの、熱水による置換が主要な排油機構となる熱攻法の研究において最も基礎となる油-熱水二相系について、300℃以上の温度域までを対象とした検討を行っている。その結果、温度が上昇すると150℃付近の温度を境にして不動水飽和率は急激に増加し、残留油飽和率は低下すること、比較的軽質な油層については油層の相対浸透性の改善により増進回収が得られるのに対し、重質油層における増進回収効果は温度上昇による油の粘度低下で易動度比が減少することに起因していること、および、水攻法の実施により低油飽和率状態になっている油層であっても、湿式燃焼火攻法は効果的な回収法となりうること、などを明らかにしている。

第3章では、湿式燃焼火攻法の油層内現象の解明、ならびにEOR法としての効果に関する検討を行っている。まず、セラミックス管を内管とする二重管方式の湿式燃焼火攻法実験装置を開発し、油層内の残留原油を燃料とした湿式燃焼火攻法が技術的に可能であることを実験的に確認するとともに、その成立条件について明らかにし、燃焼域の最高温度は油層圧力ならびに酸素供給量によってきまることが、湿式燃焼火攻法の排油機構として水蒸気による掃攻と熱水による掃攻の2形態があることを明らかにしている。また、湿式燃焼火攻法のEOR法としての可能性について検討した結果、水蒸気による掃攻ならびに熱水による掃攻のそれぞれについて、水攻法実施後の油層であっても、水攻法実施前の初期油量に対して15～30%程度の高い油回収率が得られ、EOR法として有望であることを明らかにしている。さらに要素研究として、原油を燃料とした湿式燃焼反応実験を行い、湿式燃焼による油の変質やアルコールや有機酸等の水溶性生成物による二相流動への影響に関する考察を行うとともに、酸化発熱速度式を導出している。

第4章では、第3章で解明した現象を基に油-水二相流動系の湿式燃焼火攻法モデルを構築し、数値計算を行っている。そして、酸素圧入レート、酸素濃度、水の圧入レート、初期油層温度、予熱のための圧入熱水温度および原油の比重等の影響について考察することにより、湿式燃焼火攻法における挙動全般の把握を行っている。その結果、油層内で湿式燃焼反応を安定的に持続させるためには、油層内における酸素の流速が供給冷水の流速よりも速いことが条件となるなど、微妙な熱バランスを満足させることが必要であるという燃焼域の形成条件と、温度上昇に起因する増進回収機構について重要な知見を得ている。

第5章は、本論文の結論であり、本研究を通じて得られた成果を総括し、要約している。

以上要するに本研究は、新たな増進採油法としての可能性を有する湿式燃焼火攻法を取り上げ、その成立条件、排油機構等について解明し、増進採油法としての評価を行った結果、湿式燃焼火攻法が新たな優れたEOR法であることを明らかにしたもので、地球工学、エネルギー資源工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士（工学）の学位論文として合格と認める。